

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
2. Oktober 2003 (02.10.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 03/080893 A1

(51) Internationale Patentklassifikation: C23C 16/448,  
14/22, 14/54, 16/52, 14/12

HEUKEN, Michael [DE/DE]; Im Erb 12, 52078 Aachen  
(DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP03/02860

(74) Anwälte: GRUNDMANN, Dirk usw.; Rieder & Partner,  
Corneliusstrasse 45, 42329 Wuppertal (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:  
19. März 2003 (19.03.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
102 12 923.1 22. März 2002 (22.03.2002) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): ALXTRON AG [DE/DE]; Kackerstrasse 15-17,  
52072 Aachen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): JÜRGENSEN, Hol-  
ger [DE/DE]; Rathausstrasse 43d, 52072 Aachen (DE).

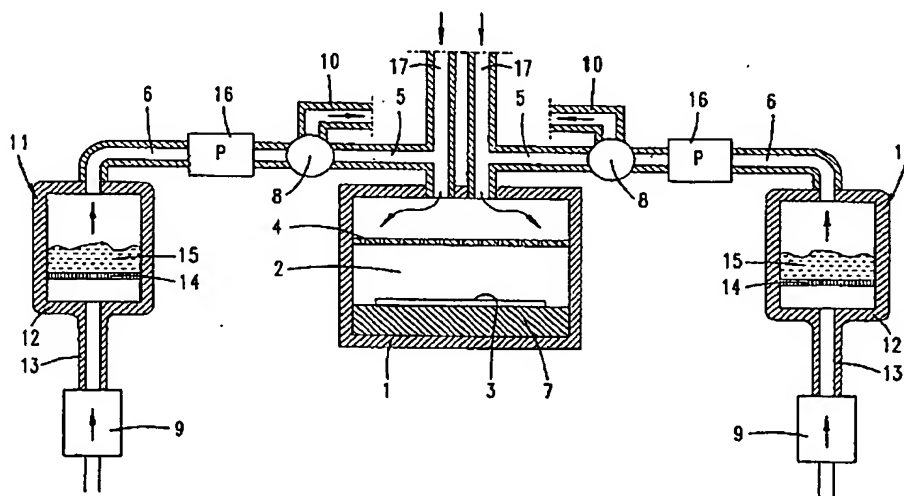
(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,  
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,  
GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR,  
KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK,  
MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO,  
RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ,  
UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,  
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),  
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,  
TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE,  
DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR COATING A SUBSTRATE AND DEVICE FOR CARRYING OUT THE METHOD

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUM BESCHICHTEN EINES SUBSTRATES UND VORRICHTUNG ZUR DURCHFÜH-  
RUNG DES VERFAHRENS



(57) Abstract: The invention relates to a method and a device for coating at least one substrate with a thin layer in a processing chamber (2) of a reactor (1). A solid or liquid starting material (15) stored at least in a reservoir (12) is guided into the processing chamber (2) as a gas or an aerosol by means of a carrier gas, where it is condensed on the substrate (3). The solid or liquid starting material (15) is maintained at a source temperature which is higher than the substrate temperature. In order to enable a targeted adjustment of the composition, sequence of layers and properties of the contact surface which determine the properties of the components, the carrier gas flows through the starting material (15) and the supply of the gaseous starting material to the processing chamber (2) is controlled by means of at least one valve (8) and one mass flow regulator (9).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

**(57) Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zum Beschichten mindestens eines Substrates mit einer dünnen Schicht in einer Prozesskammer (2) eines Reaktors (1), wobei ein mindestens in einem Vorratsbehälter (12) bevorrateter fester oder flüssiger Ausgangsstoff (15) als Gas oder Aerosol mittelst eines Trägergases in die Prozesskammer (2) gebracht wird und dort auf dem Substrat (3) kondensiert, wobei der feste oder flüssige Ausgangsstoff (15) auf einer Quelltemperatur gehalten wird, die höher ist als die Substrattemperatur. Um eine gezielte Einstellung von Zusammensetzung, Schichtfolge und Eigenschaften der Grenzfläche, die die Eigenschaften der Bauelemente bestimmen zu erlauben, ist vorgesehen, dass das Trägergas den Ausgangsstoff (15) durchströmt und die Zufuhr des gasförmigen Ausgangsstoffes zur Prozesskammer (2) mittelst mindestens eines Ventils (8) und eines Massenflussreglers (9) kontrolliert wird.

## Verfahren zum Beschichten eines Substrates und Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zum Beschichten mindestens eines Substrates mit einer dünnen Schicht in einer Prozesskammer eines Reaktors, wobei  
5 mindestens ein in einem Vorratsbehälter bevorrateter fester oder flüssiger Ausgangsstoff als Gas oder Aerosol mittelst eines Trägergases in die Prozesskammer gebracht wird und dort auf einem Substrat kondensiert, wobei der feste oder flüssige Ausgangsstoff auf einer Quellentemperatur gehalten wird, die  
10 höher ist als die Substrattemperatur. Die Erfindung betrifft darüber hinaus eine Vorrichtung, insbesondere zur Durchführung dieses Verfahrens mit einem Reaktorgehäuse und einer darin angeordneten Prozesskammer, in welcher sich ein temperierbarer Substrathalter und ein temperierbares Gaseinlassorgan befinden, mit von mehreren temperierbaren Behältern zur Aufnahme je eines festen oder flüssigen Ausgangsstoffes zum Gaseinlassorgan führende, temperierbare Gasleitungen für ein Trägergas und des jeweiligen in die Gasform gebrachten Ausgangsstoffes. In den Behältern wird der Ausgangsstoff bei einem regulierten Druck bevorratet. Die Beschichtung findet in der Prozesskammer ebenfalls bei einem regulierten Druck statt.

20

Eine derartige Vorrichtung beschreibt die WO 01/61077 A2. Dort befindet sich in einer Prozesskammer eines Reaktors ein kühlbarer Substrathalter, dem ein beheizbares Gaseinlassorgan in Form eines Duschkopfes gegenüberliegt. In das Gaseinlassorgan münden getrennt voneinander Gasleistungen, durch welche  
25 ein Trägergas und im jeweiligen Trägergas gelöste gasförmige Ausgangsstoffe der Prozesskammer zugeführt werden. Die gasförmigen Ausgangsstoffe entstammen Behältern, die auf eine Quellentemperatur aufgeheizt sind. In diesen Behältern befinden sich gasförmige oder flüssige Ausgangsstoffe. Durch die verschließbaren Behälteröffnungen dampft der flüssige oder feste Ausgangsstoff. Dieser Dampf wird vom Trägergas transportiert.

30

BESTÄTIGUNGSKOPIE

In dieser WO 01/61071 A1 werden weitere Schriften genannt, die sich ebenfalls mit einem gattungsgemäßen Verfahren zur Kondensationsbeschichtung befassen, beispielsweise die US 5,554,220. Diese Schrift offenbart ein Verfahren zur OVPD. Mit diesem Verfahren sollen Schichten aus optischen, nicht linearen, organischen Salzen abgeschieden werden. Diese Salze werden in einem Schiffchen (Tiegel) bevorratet, welches sich in einer heißen Zone des Reaktors befindet. Zuzufolge der dort herrschenden Quellentemperatur verdampft das organische Salz. Mittelst eines über das Schiffchen strömenden Trägergasstroms wird der in die Gasform gebrachte feste Ausgangsstoff weiter in eine Depositionszone transportiert, wo auf einem Substrathalter ein Substrat angeordnet ist. Da die Substrattemperatur niedriger ist, als die Quellentemperatur, kondensiert der gasförmige Ausgangsstoff auf der Substratoberfläche zu einem dünnen Film. Mit dieser Methode bzw. mit den dort beschriebenen Vorrichtungen lassen sich die Basismaterialien, nämlich Schichten, für organische Leuchtdioden OLED aus kleinen Molekülen fertigen.

Die zu erzielende Schichtdicke wird bei dem Verdampfungsverfahren durch die Depositionszeit festgelegt. Die Depositionsrate wird durch die Temperatur des Verdampferschiffchens festgelegt. Werden mehrere Quellen, also mehrere Schiffchen oder Tiegel verwendet, kann es zu Querverunreinigung der verschiedenen Quellensubstanzen kommen. Jede Quelle muss daher in einer separaten Prozesskammer angeordnet werden. Ferner tritt eine ungewollte Verteilung von Materialien mit hohem Dampfdruck in dem gesamten Depositionssystem auf. Dies führt zu einer unkontrollierten Verschleppung in nachfolgende Schichten der Struktur oder in den nächsten Prozess.

OLEDs mit hoher Leuchtkraft, niedrigen Betriebsspannungen und langer Lebensdauer benötigen eine Folge aus vielen dotierten und undotierten Schichten. Diese müssen in einem Prozess nacheinander abgeschieden werden. Zu diesen

Schichten gehören Elektronen- und Lochleiter, Barrierschichten und aktive lichtemittierende, lichtleitende oder lichtreflektierende Schichten. Diese Schichten sollen bevorzugt so hergestellt werden, dass sich die Zusammensetzung und damit ihre Eigenschaften in Depositionsrichtung ändert. Die Schichteigenschaften, also die Schichtzusammensetzung oder der Dotierstoffgehalt sollen sich sowohl abrupt, als auch kontrolliert stetig ändern können. Ersteres ist für scharfe Grenzflächen zwischen den Schichten erforderlich.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, die zuvor erörterten Nachteile zu beheben und ein Verfahren anzugeben, mittelst welchem eine gezielte Einstellung von Zusammensetzung, Schichtfolge und Eigenschaften der Grenzfläche, die die Eigenschaften der Bauelemente bestimmen, erlaubt.

Gelöst wird die Aufgabe durch die in den Ansprüchen angegebene Erfindung.

Der Anspruch 1 zielt auf ein Verfahren ab, bei dem das Trägergas den Ausgangsstoff durchströmt und die Zufuhr des gasförmigen Ausgangsstoffs zur Prozesskammer mittelst mindestens eines Ventils und eines Massenflussreglers kontrolliert wird. Bei dem Ventil handelt es sich bevorzugt um ein Umschaltventil, das zwischen dem Behälter und dem Gaseinlassorgan angeordnet ist. Der Massenflussregler kann vor dem Behälter angeordnet sein. Um die Verdampfungsrate konstant zu halten, ist der Behälter thermostatisiert. Auch die Gaszuleitung zum Behälter ist bevorzugt thermostatisiert, so dass das in dem Behälter einströmende Gas dieselbe Temperatur besitzt, die auch der feste oder flüssige Ausgangsstoff besitzt. Um den Gasdruck innerhalb des Behälters zu kontrollieren, kann sich stromabwärts des Behälters in der Gasleitung ein Druckkontrollorgan befinden, mittelst welchem der Druck im Behälter auf einem vordefinierten Wert gehalten wird. Mittelst des Ventils kann der aus dem Behälter strömende Gasfluss, der aus dem Trägergas und dem darin gelösten gasförmigen Ausgangsstoff besteht, entweder in die Prozesskammer oder in

einem Auspuff geleitet werden. Mit dieser Vent-Run-Schaltung ist eine genaue Voreinstellung der Gaskonzentration und eine schlagartige Zuschaltung des Ausgangsstoffes möglich. In einer Weiterbildung der Erfindung ist vorgesehen, dass mindestens zwei verschiedene Behälter voneinander verschiedene Ausgangsstoffe beinhalten und individuell von einem Trägergas durchströmt und die Zufuhr der jeweiligen gasförmigen Ausgangsstoffe zur Prozesskammer mittelst Ventilen und Massenflussreglern kontrolliert werden. Dabei ist jedem Behälter ein Ventil und ein Massenflussregler zugeordnet. Ferner kann vorgesehen sein, dass die Zufuhr mindestens eines der mindestens zwei in je einem Trägergas gelösten Ausgangsstoffe durch Variation des geregelten Massenflusses während des Abscheidungsprozesses geändert wird. Ferner ist vorgesehen, dass der Massenfluss ein- oder ausgeschaltet wird. Der Massenfluss kann aber auch stetig an- oder absteigen. Als Ausgangsstoffe dienen bevorzugt organische Moleküle. Die abgeschiedene Schicht kann zu einer OLED weiterverarbeitet werden. Bevorzugt werden nacheinander eine Vielzahl aus ein oder mehreren Ausgangsstoffen bestehende Schichten abgeschieden. Die Schichten dieser Schichtfolgen können aus unterschiedlichen Materialien bestehen. Die erfindungsgemäße Vorrichtung zeichnet sich dadurch aus, dass die Gasströme, die zum Gaseinlassorgan geführt werden, mittelst Ventilen und Gasmassenflussreglern zeitlich kontrollierbar in die Prozesskammer leitbar sind. Hierzu ist insbesondere vorgesehen, dass jeder der Behälter von unten nach oben durchströmt ist. Der gasförmige oder flüssige Ausgangsstoff kann daher auf einer porösen Zwischenwand des Behälters liegen, durch welche das auf die Temperatur des Ausgangsstoffes temperierte Trägergas strömt. Die Massenflussregler sind vorzugsweise dem Behälter vorgeordnet. Ein Umschaltventil ist dem Behälter nachgeordnet. Ein Druckregler kann dem Behälter ebenfalls nachgeordnet sein und befindet sich zwischen Behälter und dem Umschaltventil.

Die gasförmigen Ausgangsstoffe zur Herstellung der Bauelementstrukturen werden in einem Gasstrom, z.B. Stickstoff, Argon oder Helium transportiert.

Die Depositionsrate, die Zusammensetzung und die Menge an Dotierstoff, die in die Schicht eingebaut wird, wird durch die Konzentration der jeweiligen Ausgangssubstanzen im Gasstrom bestimmt. Die Einstellung der jeweiligen Konzentration im Gasstrom erfolgt mittelst mehreren unabhängigen Massen-

5 flussreglern. Es sind auch Verdünnungsleitungen vorgesehen, die nach dem Umschaltventil in die Zuleitung zum Gaseinlassorgan münden. Es besteht die Möglichkeit durch eine Veränderung der Quelltemperatur den Dampfdruck der Ausgangsstoffe in den jeweiligen Behältern unabhängig voneinander zu verändern, um damit die Konzentration im Gasfluss wesentlich zu erhöhen

10 oder zu erniedrigen. Der jeweilige Quellenbehälter ist so aufgebaut, dass sich die Zusammensetzung des Gasstroms reproduzierbar und nahezu linear mit dem Trägergasfluss ändert. Die Leitungen von den Quellen zum Reaktor sind so aufgebaut, dass die eingestellten Gaszusammensetzungen erhalten bleiben. Die Gasleitungen sind insbesondere derart temperiert, dass der Dampfdruck

15 des gasförmigen Ausgangsstoffes im Trägergas niedriger ist, als der Sättigungsdampfdruck, so dass keine Kondensation entstehen kann. Diese Voraussetzungen gelten auch für die Temperatur des Gaseinlassorgans. Durch eine Separation der Quellen und der Leitungen erfolgt keine gegenseitige Verunreinigung. Die Drucke in den Leitungen bzw. in den Behältern werden über den

20 obengenannten Druckregler geregelt. Ein abruptes und reproduzierbares Ab- und Anschalten der Quelle ist durch die Ventile möglich. Diese befinden sich möglichst in der Nähe des Reaktors. Da alle Quellen räumlich voneinander getrennt sind, erfolgt keine Kreuzkontamination der Quellen. Die Deposition einer Schichtenfolge, die aus mehreren qualitativ unterschiedlichen Schichten

25 besteht, kann in einer Prozesskammer erfolgen, und zwar in unmittelbar aufeinander abfolgenden Schritten. Eine gegenseitige Beeinflussung der Gasströme erfolgt nicht, da die Zusammenführung der stark verdünnten Quellenflüsse erst kurz vor der Prozesskammer erfolgt. Das Gaseinlassorgan des Reaktors und der Gasweg vom Gaseinlassorgan zum Substrat ist so gestaltet, dass die einge-

30 stellten Gaszusammensetzungen sich nicht unreproduzierbar verändern. Die

Schichtdicken werden somit im Wesentlichen nur durch die Schaltzeiten definiert. Durch den erfindungsgemäßen Aufbau der Prozesskammer und der Peripherie, also der Anordnung der Ventile der Behälter und der Massenflussregler ist eine sehr schnelle Zusammensetzungsänderung der Gasphase und damit der Schichtzusammensetzung möglich. Die oben beschriebene Vent-Run-Schaltung ermöglicht eine genaue Voreinstellung der Gaskonzentration. Bevorzugt befinden sich in dem gesamten Depositionssystem keine ungespülten Leerräume, so dass keine ungewünschte Vermischung der Gase erfolgt. Aus diesen Gründen sind die Eigenschaften der Grenzflächen zwischen den einzelnen abgeschiedenen Schichten genau einstellbar. In Wachstumspausen können die Oberflächen mit einem Inertgas gespült werden. Die Pausenzeiten sind insbesondere zufolge der Vent-Run-Schaltung frei wählbar. Minimale Pausenzeiten im Bereich von wenigen Sekundenbruchteilen sind möglich. Schaltzeiten für die Position oder Pausen von einigen Sekundenbruchteilen bis zu mehreren Minuten sind einstellbar. Die Prozessparameter in den Wachstumspausen sind weitestgehend frei einstellbar. Z.B. kann der Gasstrom, die Temperatur voreingestellt werden. Das erfindungsgemäße Verfahren zeichnet sich dadurch aus, dass das Wachstum der Schichten nicht nur graduell begonnen oder graduell beendet werden kann. Das Schichtwachstum lässt sich vielmehr abrupt ein- oder ausschalten. Dies führt zu einer präzisen Kontrolle der Grenzflächen der einzelnen aufeinander abgeschiedenen Schichten. Die Schichten können eine Dicke von nur wenigen Nanometern aufweisen. Zwischen den einzelnen Schichten können auch subatomare Lagen abgeschieden werden, um die Grenzflächen zu beeinflussen. Mittels dieser subatomaren Lagen können die Oberflächenladungen abgesättigt werden. Dies führt zu einer gewünschten Bandverbiegung. Zur Beeinflussung der Grenzflächen und insbesondere der Grenzflächen-Aufladungen können Metalle oder Polymere abgeschieden werden. Es ist aber auch möglich, die Grenzflächen lediglich durch pausieren des Wachstums zu beeinflussen. Hierzu wird die Deposition abrupt abgeschaltet. Es wird eine gewisse Zeit gewartet. In dieser Zeit findet kein Wachstum statt. In dieser Zeit



kann sich die Oberfläche elektronisch verändern. Nach der Wartezeit kann das Schichtwachstum abrupt oder graduell wieder begonnen werden. Erfindungsgemäß werden Festkörper oder Flüssigkeiten als Ausgangsstoffe verwendet. Es können dabei solche Ausgangsstoffe verwendet werden, die sich verdampfen lassen. Es können aber auch solche Ausgangsstoffe verwendet werden, bei denen die Verdampfungstemperatur höher ist als die Zerlegungstemperatur. Solche Stoffe lassen sich nicht verdampfen, da sie sich vorher chemisch zerlegen. Diese Stoffe können als Aerosol, also als Nebel transportiert werden.

- 10 Ausführungsbeispiele der Erfindung werden anhand beigelegter Zeichnungen erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 den grob schematischen Aufbau einer Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens mit einem eine Prozesskammer aufweisenden Reaktor und zwei Behälter für die Ausgangsstoffe,

Fig. 2a den zeitlichen Verlauf der Konzentration eines in die Prozesskammer geleiteten Dotierstoffes,

20 Fig. 2b den zugehörigen Verlauf der Konzentration eines in die Prozesskammer gebrachten schichtbildenden Ausgangsstoffes (A),

Fig. 2c das resultierende Dotierstoffprofil der Schicht als Funktion der Schichtdicke,

25 Fig. 3a den zeitlichem Verlauf der Konzentration eines in die Prozesskammer geleiteten ersten Ausgangsstoffes (A),

- Fig. 3b korrespondierend zu Figur 3a den zeitlichen Verlauf der Konzentration eines in die Prozesskammer geleiteten zweiten Ausgangsstoffes (B),
- 5 Fig. 3c korrespondierend zu den Figuren 3a und 3b die Schichtzusammensetzung als Tiefenprofil,
- Fig. 4 grobschematisch dargestellt ein weiteres Ausführungsbeispiel einer Beschichtungsvorrichtung,
- 10 Fig. 5 der Grundriss eines kreisförmigen Gasauslassorgans 4,
- Fig. 6 der Grundriss eines rechteck-förmigen Gasauslassorgans in Form eines Quadrates,
- 15 Fig. 7 der Grundriss eines rechteckigen Gasauslassorgans in Form eines schmalen Streifens und
- Fig. 8 ein weiteres Ausführungsbeispiel gemäß Fig. 4.
- 20
- Die in der Figur 1 dargestellte Vorrichtung besteht aus einem Reaktor 1, der ein temperierbares Gehäuse aufweist. Die Heizung und die Gasableitung und weitere an sich bekannte Ausgestaltungsmerkmale dieses Reaktors 1 sind der Übersichtlichkeit halber in der Zeichnung nicht dargestellt. Der Boden der sich in dem Reaktor befindlichen Prozesskammer 2 wird von einem Substrathalter 7
- 25 ausgebildet, welcher temperierbar ist. In der Regel wird der Substrathalter 7 gekühlt, damit die durch das Gaseinlassorgan 4 in die Prozesskammer 2 hineinströmenden gasförmigen Ausgangsstoffe auf dem auf dem Substrathalter 7 liegenden Substrat 3 aufkondensieren, um eine dünne Schicht auszubilden.

- Das Gaseinlassorgan 4 kann die Form eines Duschkopfes haben. Oberhalb des Gaseinlassorgans 4 befindet sich eine Gasmischkammer, in welche mehrere temperierte Gasleitungen 5 münden. Im Ausführungsbeispiel sind zwei temperierte Leitungen 5 dargestellt. Die Temperatur der Leitungen 5 und des Gaseinlassorgans 4 ist höher als die Substrattemperatur und so hoch, dass innerhalb der Leitungen der gasförmige Ausgangsstoff nicht kondensiert, sich nicht chemisch verändert, insbesondere sich nicht zerlegt.
- 10 Die gasförmigen Ausgangsstoffe werden in Gasquellen bereitgestellt. Diese Gasquellen bestehen aus einem Behälter 11, der eine temperierbare Wand 12 besitzt. Die Wand 12 wird auf eine Quellentemperatur geheizt, die höher ist, als die Substrattemperatur. In den Boden des Behälters 11 mündet eine temperierte Zuleitung 13. Die Leitung wird bevorzugt auf derselben Temperatur gehalten, wie die Behälterwand 12. Die Leitung 13 wird mit einem Trägergas gespeist, dessen Fluss von einem Massenflussregler 9 eingestellt wird. Als Trägergas kommen z.B. Stickstoff, Argon oder Helium in Betracht. Dieses Trägergas durchströmt eine poröse Zwischenwand 14. Auf der porösen Zwischenwand 14 liegt der feste, gegebenenfalls auch flüssige Ausgangsstoff. Der Ausgangsstoff besteht aus kleinen organischen Molekülen, wie sie beispielsweise in der US 5,554,220 genannt sind. Das Trägergas durchströmt den flüssigen oder festen Ausgangsstoff 15. Der auf der oberliegenden Behälteröffnung ausströmende Trägergasstrom ist mit dem gasförmigen Ausgangsstoff beladen, bevorzugt gesättigt. Die temperierte Leitung 6 mündet in einen Druckregler 16, mittels welchem der Behälterdruck geregelt wird. Stromabwärts des Druckreglers 16 befindet sich ein temperiertes Umschaltventil 8, mittels welchem der Gasfluss entweder in das Gaseinlassorgan 4 oder in eine Vent-Leitung 10 geleitet werden kann. Kurz vor der Mündung der Gasleitung 5 in das Gaseinlassorgan 4 münden Trägergasleitungen 17 in die Gasleitung 5, um wahlweise eine ergänzende Verdünnung vornehmen zu können oder um einen Bypass-Betrieb zu verwirk-
- 15  
20  
25  
30

lichen. Beispielsweise kann durch die Leitung 17 nur dann ein Gasstrom geleitet werden, wenn das Ventil 8 den aus dem Behälter 15 kommenden Gasstrom in die Vent-Leitung 10 schaltet. Bevorzugt sind die durch die Leitung 17 und die Vent-Leitung 19 strömenden Gasströme gleich groß.

5

Die Figuren 2a bis 2c zeigen das erfindungsgemäße Verfahren am Beispiel der Herstellung eines Dotierstoffprofils. Durch eine entsprechende Variation des vom Massenflussregler 9 in den Behälter geleiteten Trägergasstroms kann die Dotierstoffgaskonzentration, die in der Figur 2a abgetragen ist, innerhalb der Gasphase oberhalb des Substrates eingestellt werden. Während der Phase T1 steigt die Dotierstoffkonzentration mit der Zeit linear an. Während der Phase T2 wird sie konstant gehalten, während der Phase T3 steigt die Dotierstoffkonzentration durch eine entsprechende Erhöhung des Gasflusses durch den Behälter 15 weiter stetig an. In der Phase T4 wird durch stetige Reduzierung des Gasstromes die Dotierstoffkonzentration linear bis auf Null reduziert. In der Phase T5 ist das Ventil 8 geschlossen. In der Phase T6 wird der Gasstrom zeitlich nicht linear geändert. In der Phase T7 wird der Gasstrom ebenfalls zeitlich nicht linear reduziert.

20 Der in der Figur 2b dargestellte Fluss durch den das Schichtmaterial beinhaltenden Behälter bleibt konstant. Entsprechend ist die Gaskonzentration des zugehörigen Ausgangsstoffes in der Gasphase oberhalb des Substrates konstant.

Das Schichtwachstum findet mit einer gleichmäßigen Wachstumsrate statt. Lediglich der Dotierstoffeinbau erfolgt zeitlich variabel. Daraus resultiert das in der Figur 2c dargestellte Dotierstoffprofil.

In den Figuren 3a bis 3c wird beispielhaft gezeigt, wie die Schichtzusammensetzung zeitlich variiert werden kann. In die Prozesskammer 3 sind zwei Ausgangsstoffe A und B unabhängig voneinander einleitbar. Jeder Ausgangsstoff

30

A,B befindet sich in einem separaten Behälter 11. Die Gasströme durch die Behälter 11 sind individuell einstellbar. Der Gasstrom, der durch den Behälter 11 strömt, in welchem sich die Substanz A befindet, ist in Figur 3a dargestellt. Entsprechend verläuft die Konzentration dieses gasförmigen Ausgangsstoffes in  
5 der Prozesskammer.

In der Figur 3b ist der durch den im Ausgangsstoff B beinhaltende Behälter 11 strömende Gasfluss zeitlich dargestellt. Entsprechend dem Gasfluss ändert sich die Konzentration der gasförmigen Komponente B in der Gasphase oberhalb  
10 des Substrates 3.

In der Phase T1 ist das zum Material B zugeordnete Umschaltventil 8 geschlossen und nur der Ausgangsstoff A wird in die Prozesskammer geleitet. Wie aus der Figur 3c zu entnehmen ist, enthält die zugehörige Schicht nur die Komponente A. In der Phase T2 ist das der Komponente A zugeordnete Umschaltventil auf Vent geschaltet, also geschlossen, und nur die Komponente B wird in die Prozesskammer geleitet. Entsprechend besteht die zugeordnete Schicht nur aus dem Material B. In der Phase T3 wird das Material A durch Umschalten des Ventils 8 zugeschaltet. Die zugehörige Schicht besteht aus beiden Materialien.  
15 In der Phase T4 wird der Strom durch den das Material B beinhaltenden Behälter reduziert. Es wird mehr Material A als Material B abgeschieden. In der Phase T5 wird der Gasstrom durch den die Komponente A beinhaltenden Behälter erhöht. In entsprechender Weise ändert sich die Schichtzusammensetzung. In der Phase T6 wird das zur Komponente A gehörende Ventil auf Vent geschaltet.  
20 25 Entsprechend besteht die Schicht nur aus der Komponente B. In der Phase T7 sind beide Ventile 8 auf Vent geschaltet. Es findet kein Schichtwachstum statt. In dieser Phase kann die Prozesskammer mit einem Inertgas gespült werden. In der Phase T8 sind beide Ventile 8 auf Run geschaltet. Es wird eine aus den Komponenten A und B bestehende Schicht abgeschieden.

Es ist selbstverständlich auch möglich, die durch die Komponenten A oder B beinhaltenen Behälter strömenden Trägergase zeitlich zu variieren, wie es die Figur 2a zeigt. Dann ändert sich die Zusammensetzung der Schicht kontinuierlich. Es können so Rampenprofile hergestellt werden.

Die Variation der Zusammensetzung der Gasphase in der Prozesskammer 2 unmittelbar oberhalb des Substrates 3 ist darüber hinaus auch durch eine Variation der Temperatur innerhalb der Behälter 11 möglich. Eine schnellere Variation lässt sich aber durch die Variation des Gasflusses mittelst der Massenflussregler 9 erzielen. Darüber hinaus kann eine Variation auch durch Änderung des Drucks erzielt werden. Hierzu wird der voreingestellte Wert des Druckreglerorgans 16 geändert.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren bzw. der erfindungsgemäßen Vorrichtung lassen sich die Grenzflächen zwischen den einzelnen, aufeinander abgesetzten Schichten beeinflussen. Insbesondere ist vorgesehen, auf die Oberfläche einer der Schichten eine subatomare Lage, beispielsweise eines Metalls oder eines Polymers abzuscheiden. Mittels einer solchen oder einer ähnlichen Zwischenschicht können Oberflächenladungen abgesättigt werden. Dies führt zu einer kontrollierten Bandverbiegung. Es ist aber auch vorgesehen, dass durch ledigliches Unterbrechen des Wachstumsprozesses die Grenzflächeneigenschaften beeinflusst werden. Die typische Schichtdicke einer abgeschiedenen Schicht liegt zwischen 10 und 15 Nanometern. Die gesamte, aus einer Vielzahl von Schichten bestehende Struktur hat eine Gesamtdicke von 100 bis 150 Nanometern. Neben den zuvor beschriebenen Einsatzbereichen kann das erfindungsgemäße Verfahren auch zur Herstellung von weißen Lichtemittierern für die Beleuchtungstechnik verwendet werden.

Erfindungsgemäß können auch solche Materialien als Ausgangsstoffe verwendet werden, die sich aufgrund ihrer niedrigen Zerlegungstemperatur nicht verdampfen lassen. Solche, nicht verdampfbare Ausgangsstoffe, bei denen die Verdampfungstemperatur höher liegt als die Zerlegungstemperatur, werden  
5 als Aerosol transportiert.

Die schematische Darstellung in Fig. 4 zeigt ein Ausführungsbeispiel, bei dem mehrere thermostatisierte Kammern 18 a, 18 b und 18 c vorgesehen sind. Die einzelnen thermostatisierten Kammern 18 a, 18 b und 18 c werden auf unterschiedliche Temperaturen  $T_a$ ,  $T_b$ ,  $T_c$  gehalten. Innerhalb der Kammern 18 a, 18  
10 b, 18 c befinden sich jeweils eine Vielzahl von Behältern 11 a, 11 b, 11 c, in denen sich feste oder flüssige Ausgangsstoffe befinden, die in der vorbeschriebenen Art über ein Gaseinlassorgan 4 der Prozesskammer zugeführt werden, wo sich ein drehangetriebenes Substrat 3 befindet.

15 Die Grundrissform der Gasaustrittsfläche des Gaseinlassorganes 4 kann verschiedene Formen besitzen. Wie in der Fig. 5 dargestellt, kann die Form kreis-scheibenförmig sein. Wie in der Fig. 6 dargestellt, kann die Grundrissform der Gasaustrittsfläche des Gaseinlassorganes 6 quadratisch sein. Diese Form und  
20 die in der Fig. 7 dargestellte schmale, quasi lineare Form der Gasaustrittsfläche findet insbesondere bei solchen Vorrichtungen bzw. Verfahren Verwendung, bei denen ein endloses Substrat beschichtet wird. Eine derartige Vorrichtung ist schematisch in der Fig. 8 dargestellt. Dort tritt das endlose, flexible Substrat 3 einseitig in den Prozesskammer ein und gleitet über einen temperierbaren  
25 Substrathalter 7. Das flexible Substrat 3 tritt auf der anderen Seite der Prozesskammer wieder aus.

Es ist möglich, die Schicht durch Masken lateral zu strukturieren. Vorzugsweise werden innerhalb der Prozesskammer eine Vielzahl von Schichten abgeschie-

den. Auf die Schichtenfolge kann zusätzlich eine Schutz-, Isolier- oder Antireflexschicht aufgebracht werden.

- 5 Alle offenbarten Merkmale sind (für sich) erfindungswesentlich. In die Offenbarung der Anmeldung wird hiermit auch der Offenbarungsinhalt der zugehörigen/beigefügten Prioritätsunterlagen (Abschrift der Voranmeldung) vollinhaltlich mit einbezogen, auch zu dem Zweck, Merkmale dieser Unterlagen in Ansprüche vorliegender Anmeldung mit aufzunehmen.



## PATENTANSPRÜCHE

1. Verfahren zum Beschichten mindestens eines Substrates mit einer dünnen Schicht in einer Prozesskammer (2) eines Reaktors (1), wobei ein mindestens in einem Vorratsbehälter (12) bevorrateter fester oder flüssiger Ausgangsstoff (15) als Gas oder Aerosol mittelst eines Trägergases in die Prozesskammer (2) gebracht wird und dort auf dem Substrat (3) kondensiert, wobei der feste oder flüssige Ausgangsstoff (15) auf einer Quelltemperatur gehalten wird, die höher ist als die Substrattemperatur, dadurch gekennzeichnet, dass das Trägergas den Ausgangsstoff (15) durchströmt und die Zufuhr des gasförmigen Ausgangsstoffes zur Prozesskammer (2) mittelst mindestens eines Ventils (8) und eines Massenflussreglers (9) kontrolliert wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1 oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens zwei verschiedene Behälter (11) voneinander verschiedene Ausgangsstoffe (15) beinhalten und individuell von einem Trägergas durchströmt und die Zufuhr des jeweiligen gasförmigen Ausgangsstoffes zur Prozesskammer mittelst je mindestens eines Ventils (8) und je mindestens eines Massenflussreglers (9) kontrolliert werden.
3. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Zufuhr mindestens eines der mindestens in je einem Trägergas gelösten Ausgangsstoffe durch Variation des geregelten Gasflusses während des Abscheidungsprozesses geändert wird.
4. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Massenfluss sprunghaft ein oder ausgeschaltet wird.

5. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Massenfluss stetig an- oder absteigt.
- 5
6. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Ausgangsstoff bzw. die Ausgangsstoffe organische Moleküle sind und die abgeschiedene Schicht zu einer OLED weiterverarbeitet wird.
- 10
7. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass nacheinander eine Vielzahl aus ein- oder mehreren Ausgangsstoffen bestehende Schichten abgeschieden wird.
- 15
8. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Schichtfolge in unmittelbar aufeinanderfolgenden Beschichtungsschritten in derselben Prozesskammer durch ledigliche Änderung der Gaszusammensetzung erfolgt.
- 20
9. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass n- und p-leitende Schichten abgeschieden werden.
- 25
10. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen den dotierten Schichten undotierte Zwischenschichten abgeschieden werden

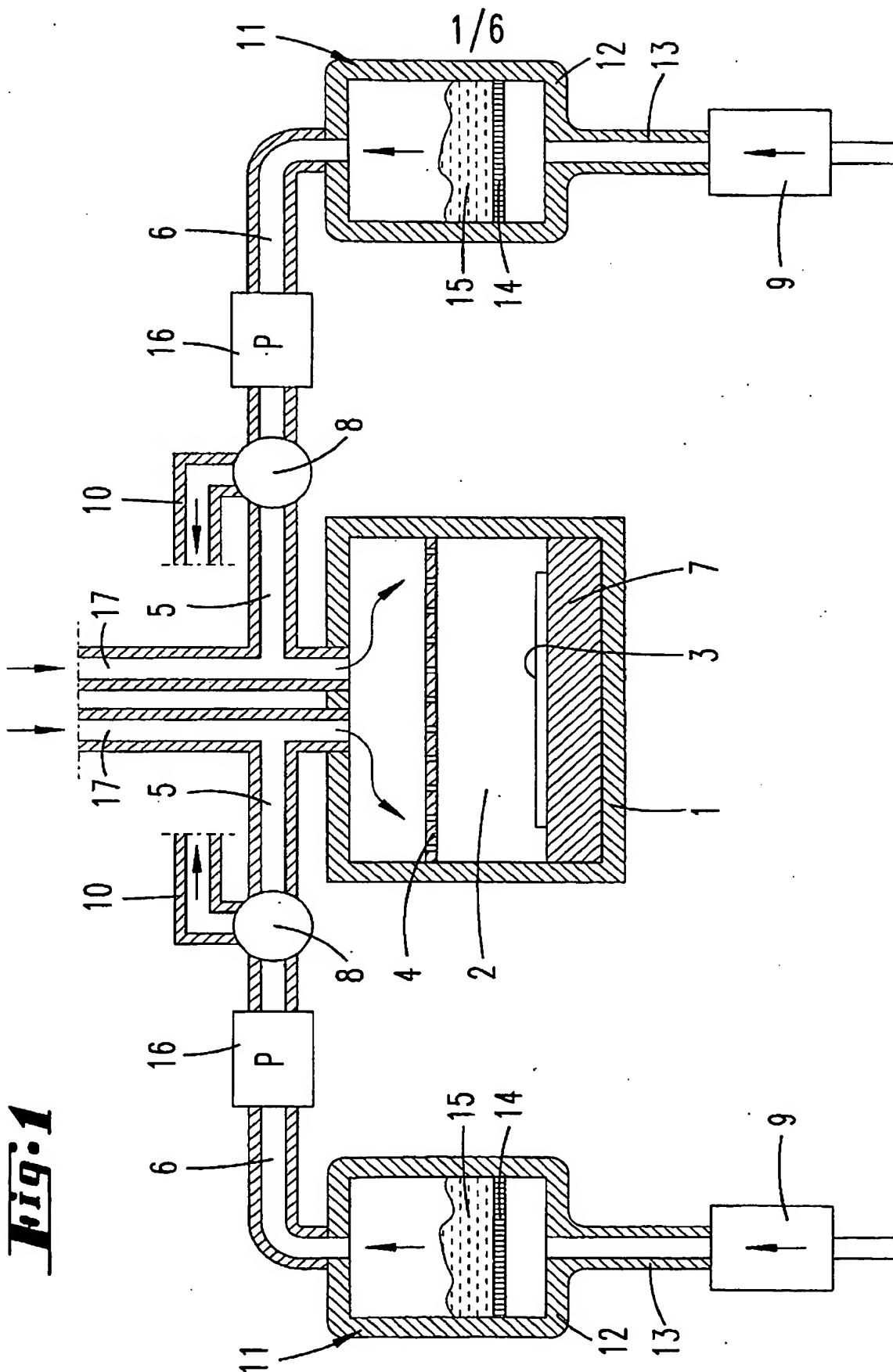
11. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass das Konzentrations-/Zusammensetzungs-Schichtdickenprofil dem zeitlichen Verlauf der durch die Behälter (11) strömenden Trägergasflüsse entspricht.
- 5
12. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass aus den abgeschiedenen Schichten/Schichtenfolgen Solarzellen, Sensoren oder Transistoren gefertigt werden.
- 10
13. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass durch Variation der Gasführung, des Drucks und der Temperatur eine Deposition einer organischen Schicht lokal auf dem Substrat begrenzt ist.
- 15
14. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Abscheidung auf endlose, flexible Substrate erfolgt.
- 20
15. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch eine laterale Strukturierung des Schichtwachstums durch Masken.
- 25
16. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach dadurch gekennzeichnet, dass die Schichten/Schichtenfolgen in einem nachfolgenden Prozess in derselben Prozesskammer mit einer Schutz-, Isolier- oder Antireflexschicht oder mit einem Metall beschichtet werden.

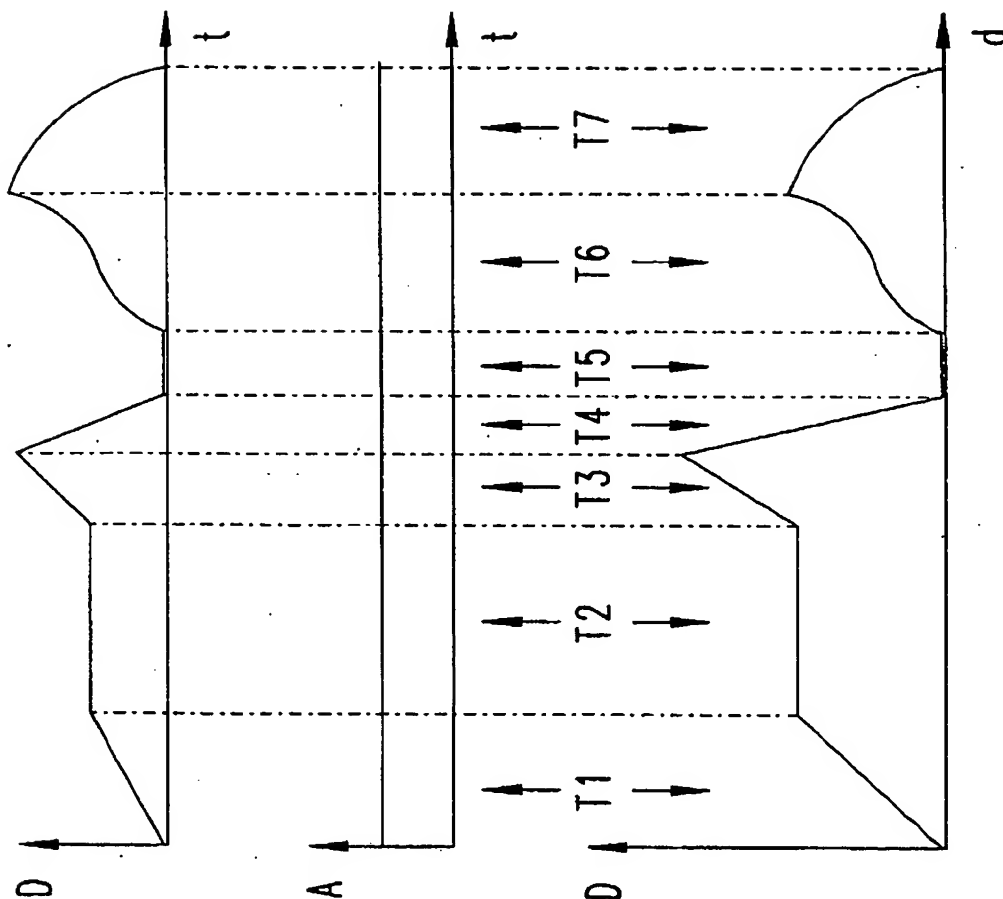
17. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche mit einem Reaktorgehäuse und einer darin angeordneten Prozesskammer (2), in welcher sich ein temperierbarer Substrathalter (7) und ein temperierbares Gaseinlassorgan (4) befinden, mit von mehreren temperierbaren Behältern zur Aufnahme je eines festen oder flüssigen Ausgangsstoffes (15) zum Gaseinlassorgan (4) führende, temperierbare Gasleitungen (5,6) für ein Trägergas und des jeweiligen in die Gasform gebrachten Ausgangsstoffes (15), dadurch gekennzeichnet, dass die Gasströme der im Trägergas gelösten gasförmigen Ausgangsstoffe je für sich mittels Ventilen (8) und Gasmassenflussreglern (9) zeitlich kontrollierbar in die Prozesskammer leitbar sind.
18. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch von unten nach oben durchströmbaren Behälter (11).
19. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch den Behältern (11) vorgeschalteten Massenflussreglern (9).
20. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch den Behälter (11) nachgeordnete Umschaltventile, mittelst welchen die gasförmigen Ausgangsstoffe und das sie tragende Trägergas entweder in die Prozesskammer (2) oder in eine Vent-Leitung (10) schaltbar sind.
21. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch ein zwischen dem Ventil (8) und dem Behälter (11) angeordnetes Druckregelorgan (16).

VGN 265 098 24409DE drg/rz/or 15. März 2002

BERICHTIGTES BLATT (REGEL 91)

**Fig. 1**



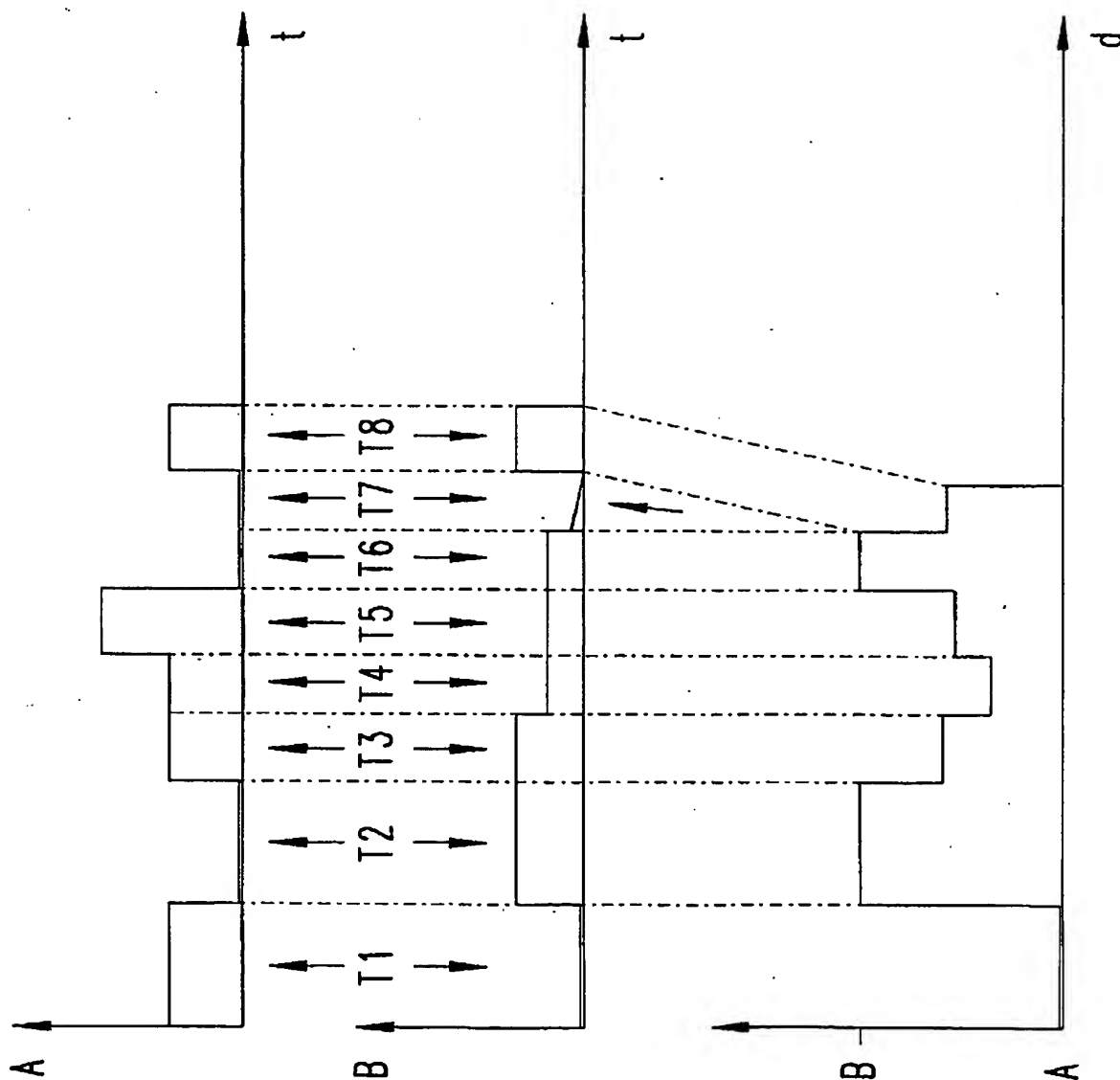


**Fig. 2a**

**Fig. 2b**

**Fig. 2c**

3/6



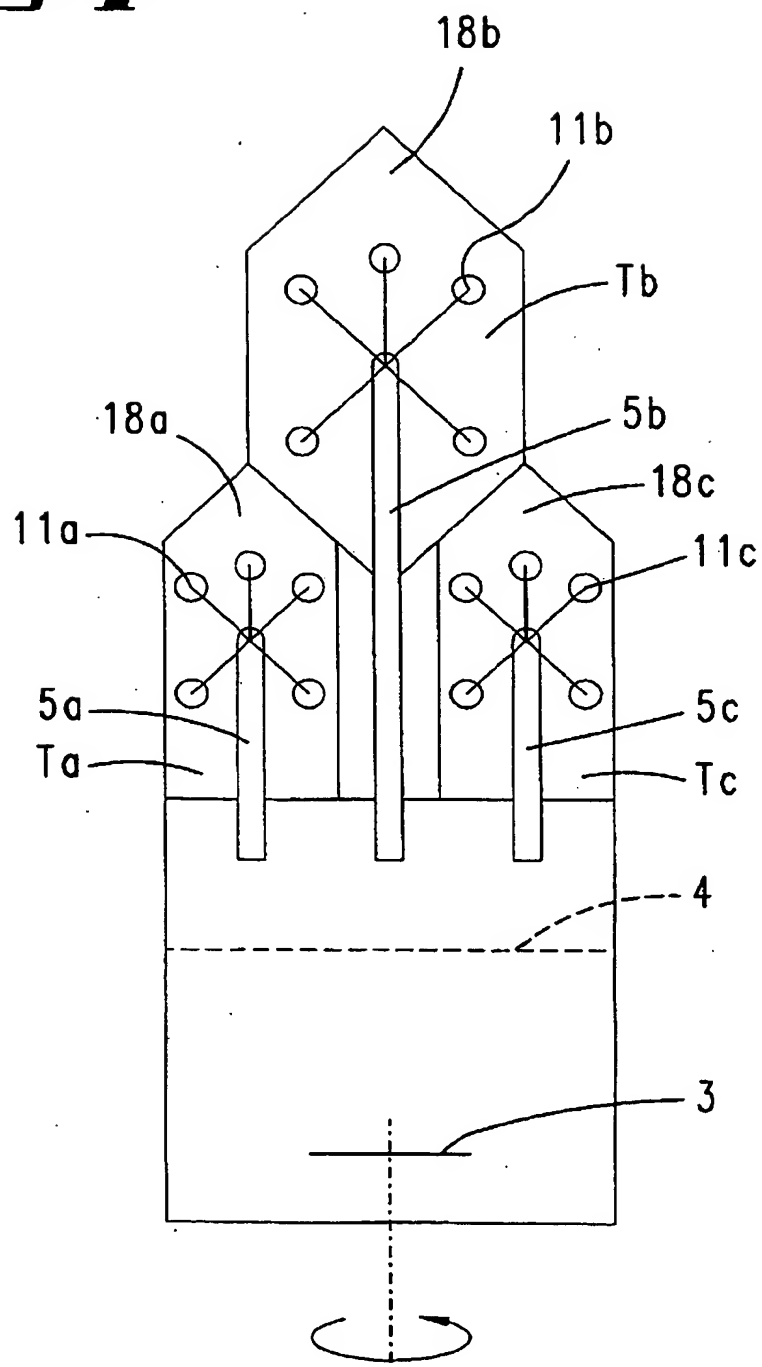
**Fig. 3a**

**Fig. 3b**

**Fig. 3c**

4/6

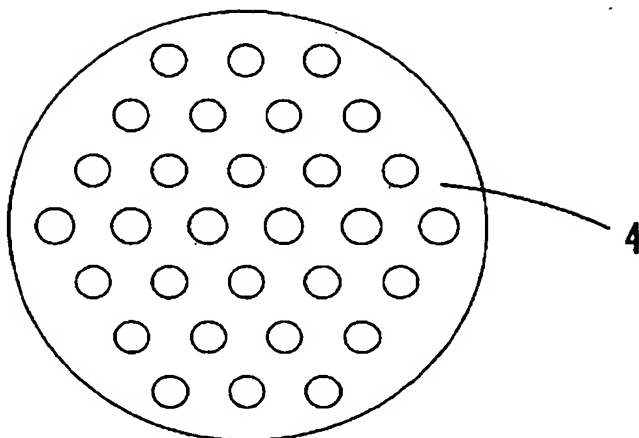
***Fig. 4.***



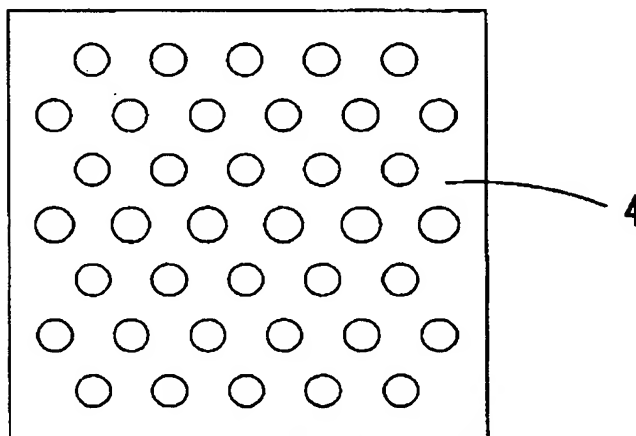


5/6

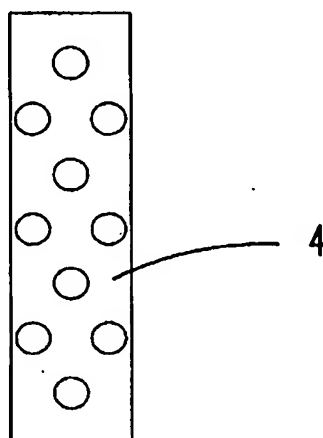
***Fig. 5***



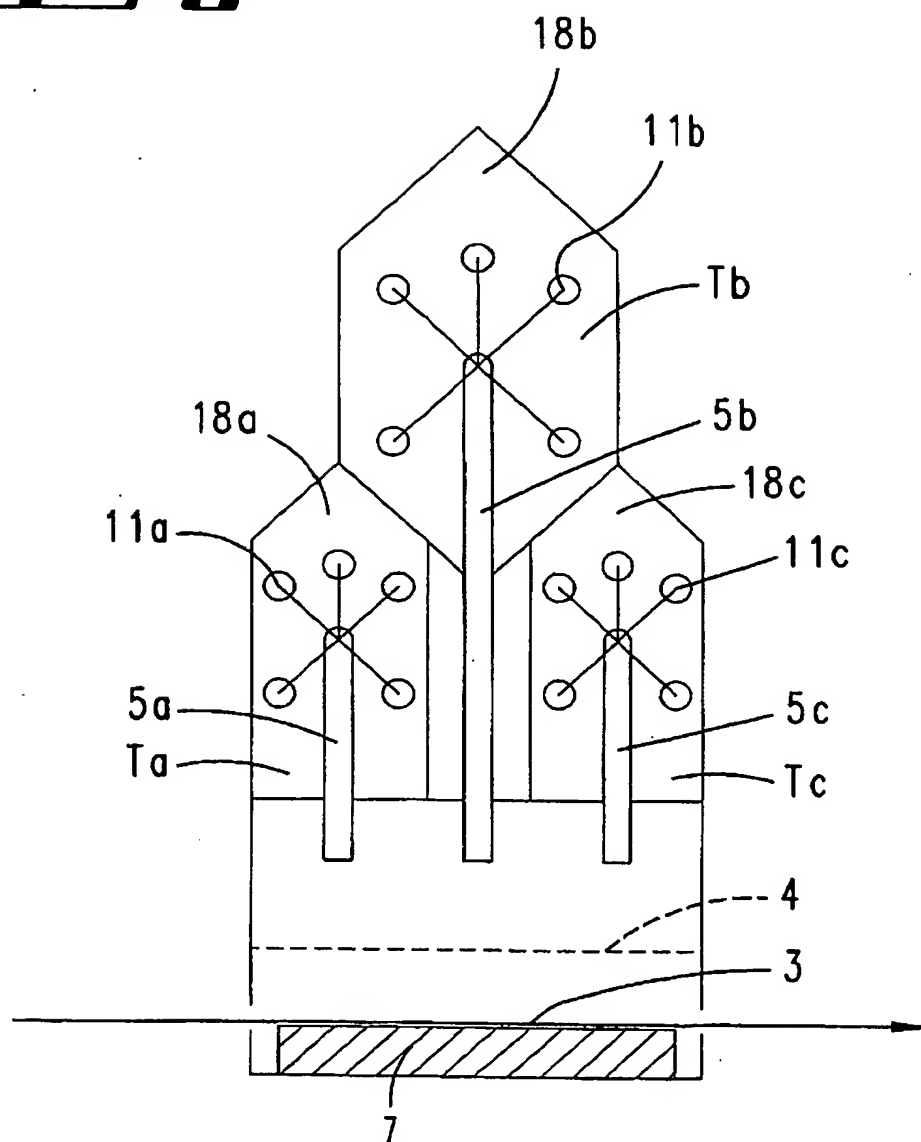
***Fig. 6***



***Fig. 7***



6/6

**Fig. 8**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 03/02860

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C23C16/448 C23C14/22 C23C14/54 C23C16/52 C23C14/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C23C B05D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 6 149 975 A (TASAKI YUZO ET AL) 21 November 2000 (2000-11-21) column 3, line 33 -column 5, line 43 ---	17
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 02, 30 January 1998 (1998-01-30) & JP 09 268378 A (DAINIPPON PRINTING CO LTD), 14 October 1997 (1997-10-14) abstract ---	1,2
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 018, no. 490 (C-1249), 13 September 1994 (1994-09-13) & JP 06 158306 A (VACUUM METALLURGICAL CO LTD), 7 June 1994 (1994-06-07) abstract --- -/-	1,2

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

24 July 2003

Date of mailing of the international search report

31/07/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Ekhult, H

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 03/02860

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 014, no. 171 (C-0706), 3 April 1990 (1990-04-03) & JP 02 022102 A (RES DEV CORP OF JAPAN; OTHERS: 01), 25 January 1990 (1990-01-25) abstract	1,2
A	WO 01 61071 A (JUERGENSEN HOLGER ; AIXTRON AG (DE); SCHMITZ DIETMAR (DE); STRAUCH) 23 August 2001 (2001-08-23) cited in the application the whole document	1-21

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 03/02860

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6149975	A	21-11-2000	JP 11278997 A	12-10-1999
JP 09268378	A	14-10-1997	NONE	
JP 06158306	A	07-06-1994	NONE	
JP 02022102	A	25-01-1990	JP 2794294 B2	03-09-1998
WO 0161071	A	23-08-2001	DE 10007059 A1	23-08-2001
			AU 3175301 A	27-08-2001
			WO 0161071 A2	23-08-2001
			EP 1255876 A2	13-11-2002
			US 2003054099 A1	20-03-2003

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/02860

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C23C16/448 C23C14/22 C23C14/54 C23C16/52 C23C14/12

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C23C B05D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 6 149 975 A (TASAKI YUZO ET AL) 21. November 2000 (2000-11-21) Spalte 3, Zeile 33 - Spalte 5, Zeile 43	17
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 02, 30. Januar 1998 (1998-01-30) & JP 09 268378 A (DAINIPPON PRINTING CO LTD), 14. Oktober 1997 (1997-10-14) Zusammenfassung	1,2
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 018, no. 490 (C-1249), 13. September 1994 (1994-09-13) & JP 06 158306 A (VACUUM METALLURGICAL CO LTD), 7. Juni 1994 (1994-06-07) Zusammenfassung	1,2
	--- -/--	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Stehen Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindertischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindertischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

24. Juli 2003

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

31/07/2003

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Ekhult, H

# INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/02860

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Beitr. Anspruch Nr.
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 014, no. 171 (C-0706), 3. April 1990 (1990-04-03) & JP 02 022102 A (RES DEV CORP OF JAPAN; OTHERS: 01), 25. Januar 1990 (1990-01-25) Zusammenfassung ---	1,2
A	WO 01 61071 A (JUERGENSEN, HOLGER ; AIXTRON AG (DE); SCHMITZ DIETMAR (DE); STRAUCH) 23. August 2001 (2001-08-23) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument -----	1-21

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (Juli 1992)

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/02860

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 6149975	A	21-11-2000	JP	11278997 A	12-10-1999
JP 09268378	A	14-10-1997	KEINE		
JP 06158306	A	07-06-1994	KEINE		
JP 02022102	A	25-01-1990	JP	2794294 B2	03-09-1998
WO 0161071	A	23-08-2001	DE	10007059 A1	23-08-2001
			AU	3175301 A	27-08-2001
			WO	0161071 A2	23-08-2001
			EP	1255876 A2	13-11-2002
			US	2003054099 A1	20-03-2003

Formblatt PCT/ISA/210 (Anhang Patentfamilie) (Juli 1992)



(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
2. Oktober 2003 (02.10.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 03/080893 A1

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C23C 16/448,  
14/22, 14/54, 16/52, 14/12

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP03/02860

(22) Internationales Anmeldedatum:  
19. März 2003 (19.03.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
102 12 923.1 22. März 2002 (22.03.2002) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): AIXTRON AG [DE/DE]; Kackertstrasse 15-17,  
52072 Aachen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): JÜRGENSEN, Hol-  
ger [DE/DE]; Rathausstrasse 43d, 52072 Aachen (DE).  
HEUKEN, Michael [DE/DE]; Im Erb 12, 52078 Aachen  
(DE).

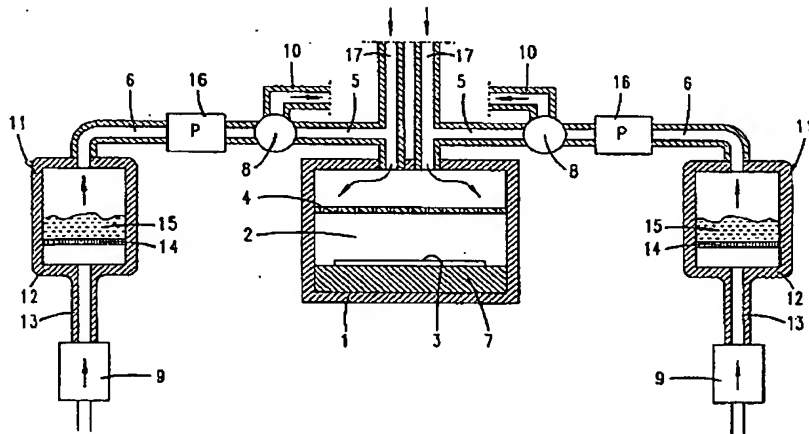
(74) Anwälte: GRUNDMANN, Dirk usw.; Rieder & Partner,  
Corneliusstrasse 45, 42329 Wuppertal (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,  
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,  
GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR,  
KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK,  
MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR COATING A SUBSTRATE AND DEVICE FOR CARRYING OUT THE METHOD

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUM BESCHICHTEN EINES SUBSTRATES UND VORRICHTUNG ZUR DURCHFÜH-  
RUNG DES VERFAHRENS



(57) Abstract: The invention relates to a method and a device for coating at least one substrate with a thin layer in a processing chamber (2) of a reactor (1). A solid or liquid starting material (15) stored at least in a reservoir (12) is guided into the processing chamber (2) as a gas or an aerosol by means of a carrier gas, where it is condensed on the substrate (3). The solid or liquid starting material (15) is maintained at a source temperature which is higher than the substrate temperature. In order to enable a targeted adjustment of the composition, sequence of layers and properties of the contact surface which determine the properties of the components, the carrier gas flows through the starting material (15) and the supply of the gaseous starting material to the processing chamber (2) is controlled by means of at least one valve (8) and one mass flow regulator (9).

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zum Beschichten mindestens eines Substrates mit einer dünnen Schicht in einer Prozesskammer (2) eines Reaktors (1), wobei ein mindestens in einem Vorratsbehälter (12) bevorrateter fester oder flüssiger Ausgangsstoff (15) als

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 03/080893 A1



RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ,  
UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht
- mit geänderten Ansprüchen

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlichungsdatum der geänderten Ansprüche:**

18. Dezember 2003

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

Gas oder Aerosol mittelst eines Trägergases in die Prozesskammer (2) gebracht wird und dort auf dem Substrat (3) kondensiert, wobei der feste oder flüssige Ausgangsstoff (15) auf einer Quelltemperatur gehalten wird, die höher ist als die Substrattemperatur. Um eine gezielte Einstellung von Zusammensetzung, Schichtfolge und Eigenschaften der Grenzfläche, die die Eigenschaften der Bauelemente bestimmen zu erlauben, ist vorgesehen, dass das Trägergas den Ausgangsstoff (15) durchströmt und die Zufuhr des gasförmigen Ausgangsstoffes zur Prozesskammer (2) mittelst mindestens eines Ventils (8) und eines Massenflussreglers (9) kontrolliert wird.

## GEÄNDERTE ANSPRÜCHE

[beim Internationalen Büro am 29. September 2003 (29.09.03) eingegangen:  
ursprüngliche Ansprüche 1 und 17 durch neue Ansprüche 1 und 17 ersetzt. Weitere Ansprüche 2-16,  
18-21 unverändert.]

## PATENTANSPRÜCHE

1. Verfahren zum Beschichten mindestens eines Substrates mit einer dünnen Schicht in einer Prozesskammer (2) eines Reaktors (1), wobei ein mindestens in einem Vorratsbehälter (12) bevorrateter fester oder flüssiger Ausgangsstoff (15) als Gas oder Aerosol mittelst eines Trägergases in die Prozesskammer (2) gebracht wird und dort auf dem Substrat (3) kondensiert, wobei der feste oder flüssige Ausgangsstoff (15) auf einer Quellentemperatur gehalten wird, die höher ist als die Substrattemperatur und das Trägergas den Ausgangsstoff (15) durchströmt, wobei die Zufuhr des gasförmigen Ausgangsstoffes zur Prozesskammer (2) mittelst mindestens eines Ventils (8) kontrolliert wird, dadurch gekennzeichnet, dass der Druck in dem Vorratsbehälter (12) mittelst eines stromabwärts des Vorratsbehälters (12) angeordneten Druckreglers (16) geregelt und der von einem stromaufwärts des Vorratsbehälters (12) angeordneten Massenflussregler (9) geregelte Gasstrom mittelst eines stromabwärts des Druckreglers (16) angeordneten Umschaltventils (8) in eine Vent-Leitung (10) schaltbar ist.
2. Verfahren nach Anspruch 1 oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens zwei verschiedene Behälter (11) voneinander verschiedene Ausgangsstoffe (15) beinhalten und individuell von einem Trägergas durchströmt und die Zufuhr des jeweiligen gasförmigen Ausgangsstoffes zur Prozesskammer mittelst je mindestens eines Ventils (8) und je mindestens eines Massenflussreglers (9) kontrolliert werden.
3. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Zufuhr mindestens eines der mindestens in je einem Trägergas gelösten Ausgangsstoffe durch Variation des geregelten Gasflusses während des Abscheidungsprozesses geändert wird.

4. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Massenfluss sprunghaft ein oder ausgeschaltet wird.
5. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Massenfluss stetig an- oder absteigt.
6. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass der Ausgangsstoff bzw. die Ausgangsstoffe organische Moleküle sind und die abgeschiedene Schicht zu einer OLED weiterverarbeitet wird.
7. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass nacheinander eine Vielzahl aus ein- oder mehreren Ausgangsstoffen bestehende Schichten abgeschieden wird.
8. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Schichtfolge in unmittelbar aufeinanderfolgenden Beschichtungsschritten in derselben Prozesskammer durch ledigliche Änderung der Gaszusammensetzung erfolgt.
9. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass n- und p-leitende Schichten abgeschieden werden.

10. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass zwischen den dotierten Schichten undotierte Zwischenschichten abgeschieden werden
11. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass das Konzentrations-/Zusammensetzungs-Schichtdickenprofil dem zeitlichen Verlauf der durch die Behälter (11) strömenden Trägergasflüsse entspricht.
12. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass aus den abgeschiedenen Schichten/Schichtenfolgen Solarzellen, Sensoren oder Transistoren gefertigt werden.
13. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass durch Variation der Gasführung, des Drucks und der Temperatur eine Deposition einer organischen Schicht lokal auf dem Substrat begrenzt ist.
14. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, dadurch gekennzeichnet, dass die Abscheidung auf endlose, flexible Substrate erfolgt.
15. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch eine laterale Strukturierung des Schichtwachstums durch Masken.
16. Verfahren nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach dadurch gekennzeichnet, dass die Schichten/Schichtenfolgen in einem nachfolgenden Prozess in derselben Pro-

zesskammer mit einer Schutz-, Isolier- oder Antireflexschicht oder mit einem Metall beschichtet werden.

17. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche mit einem Reaktorgehäuse und einer darin angeordneten Prozesskammer (2), in welcher sich ein temperierbarer Substrathalter (7) und ein temperierbares Gaseinlassorgan (4) befinden, mit von mehreren temperierbaren Behältern zur Aufnahme je eines festen oder flüssigen Ausgangsstoffes (15) zum Gaseinlassorgan (4) führende, temperierbare Gasleitungen (5,6) für ein Trägergas und des jeweiligen in die Gasform gebrachten Ausgangsstoffes (15), wobei die Gasströme der im Trägergas gelösten gasförmigen Ausgangsstoffe je für sich mittels Ventilen (8) zeitlich kontrollierbar in die Prozesskammer leitbar sind, gekennzeichnet durch einen stromabwärts des Vorratsbehälters angeordneten Druckregler (16) zur Regelung des Drucks in dem Vorratsbehälter (12) und ein stromabwärts des Druckreglers (16) angeordnetes Umschaltventil, um den von einem stromaufwärts des Vorratsbehälters (12) angeordneten Massenflussregler (9) geregelten Gasstrom in eine Vent-Leitung (10) zu schalten.
18. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch von unten nach oben durchströmbaren Behälter (11).
19. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch den Behältern (11) vorgeschalteten Massenflussreglern (9).
20. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch den Behälter (11)

nachgeordnete Umschaltventile, mittelst welchen die gasförmigen Ausgangsstoffe und das sie tragende Trägergas entweder in die Prozesskammer (2) oder in eine Vent-Leitung (10) schaltbar sind.

21. Vorrichtung nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche oder insbesondere danach, gekennzeichnet durch ein zwischen dem Ventil (8) und dem Behälter (11) angeordnetes Druckregelorgan (16).